
KARAKTERISASI LAPISAN PENYERAP DAPAT BAKAR PADA PERMUKAAN PELET UO_2 + DOPAN TiO_2

Sungkono¹, Tri Mardji Atmono²

1. Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir, BATAN

Kawasan Puspipetek, Serpong, Tangerang Selatan, 15314

2. Pusat Sains Teknologi Akselerator – BATAN

Jalan Babarsari Kotak Pos 6101 YKBB Yogyakarta 55281

e-mail : sungkhana@gmail.com

(Naskah diterima : 27-07-2016, Naskah direvisi: 25-08-2016, Naskah disetujui:
04-09-2016)

ABSTRAK

KARAKTERISASI LAPISAN PENYERAP DAPAT BAKAR PADA PERMUKAAN PELET UO_2 + DOPAN TiO_2 . Lapisan penyerap dapat bakar pada permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 telah berhasil dibuat dengan menggunakan metoda RF *sputtering*. Penelitian ini bertujuan untuk mendapatkan karakter mikrostruktur pelet UO_2 + dopan, ketebalan, kekerasan mikro, komposisi kimia dan struktur kristal lapisan penyerap dapat bakar pada permukaan pelet UO_2 . Penentuan mikrostruktur dan ketebalan lapisan dilakukan dengan menggunakan mikroskop optik, kekerasan lapisan dengan metode kekerasan mikro Vickers, komposisi kimia dengan spektrometri XRF dan struktur kristal dengan difraksi sinar-X. Hasil penelitian menunjukkan bahwa semakin besar kandungan TiO_2 dalam pelet maka semakin besar ukuran butir dalam mikrostruktur pelet dan semakin tebal lapisan yang terbentuk pada permukaan pelet UO_2 . Kekerasan lapisan permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 sinter relatif sama dan tidak bergantung pada konsentrasi dopan TiO_2 . Lapisan permukaan pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 , pelet UO_2 + 0,5 % TiO_2 dan pelet UO_2 + 0,7 % TiO_2 sinter mengandung unsur zirkonium masing-masing 1,97 μg , 2,47 μg dan 4,81 μg . Lapisan penyerap dapat bakar pada permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 sinter mempunyai fasa ZrB_2 dengan struktur kristal heksagonal.

Kata Kunci: lapisan permukaan, penyerap dapat bakar, pelet UO_2 , mikrostruktur, kekerasan, komposisi kimia, struktur kristal.

ABSTRACT

CHARACTERIZATION OF BURNABLE ABSORBER LAYER ON THE SURFACE OF UO_2 + DOPED TiO_2 PELLETS. Burnable absorber layer on the surface of UO_2 + doped TiO_2 pellets have successfully created using RF sputtering methods. The objective of this research is to obtain of microstructure characters of UO_2 + doped TiO_2 pellets, thickness, micro hardness, chemical composition and crystal structure of burnable absorber layer on the surface of UO_2 pellets. The methods used are the microstructure and layer thickness using optical microscopy, layer hardness with micro Vickers hardness method, chemical composition by XRF spectrometry, and crystal structure by X-ray diffraction. The results showed that the larger of TiO_2 content in the pellets then the greater of the grain size in the microstructure of the pellets and the thicker of the layer formed on the surface of UO_2 pellets. The hardness of surface layer of UO_2 + doped TiO_2 sintered pellets are equal and does not depend on the dopant concentration of TiO_2 . The surface layer of UO_2 + 0.3 % TiO_2 , UO_2 + 0.5 % TiO_2 and UO_2 + 0.7 % TiO_2 sintered pellets are containing zirconium respectively 1.97 μg , 2.47 μg and 4.81 μg . Burnable absorber layer on the surface of UO_2 + doped TiO_2 sintered pellets have ZrB_2 phase with a hexagonal crystal structure.

Keywords: surface layer, burnable absorber, UO_2 pellet, microstructures, micro hardness, chemical composition, crystal structure.

PENDAHULUAN

Pengembangan teknologi elemen bakar nuklir saat ini lebih diarahkan pada peningkatan fraksi bakar bahan bakar dalam teras reaktor daya tipe *Pressurized Water Reactor* (PWR). Hal ini bertujuan untuk meningkatkan efisiensi Pembangkit Listrik Tenaga Nuklir (PLTN). Berbagai usaha telah dilakukan oleh peneliti untuk meningkatkan fraksi bakar bahan bakar nuklir diantaranya adalah dengan mengembangkan teknologi pembuatan paduan zirkonium baru (Zirlo), bahan bakar UO_2 berbutir besar dan bahan bakar UO_2 berlapis bahan penyerap dapat bakar^[1]. Pembuatan bahan bakar paduan Zirlo dimaksudkan untuk memenuhi kebutuhan material kelongsong yang mempunyai stabilitas iradiasi, sifat mekanik dan ketahanan korosi yang baik, serta ekonomis secara neutronik selama penggunaannya dalam teras reaktor dengan menggunakan bahan bakar dengan fraksi bakar tinggi^[2]. Sementara itu, pembuatan bahan bakar berbutir besar dilakukan dengan tujuan untuk memperpanjang rute difusi gas produk fisi ke batas butir sehingga terjadi penundaan pelepasan gas yang teraktivasi termal pada temperatur bahan bakar^[3]. Di lain pihak, pengembangan bahan bakar berlapis tipis bahan penyerap dapat bakar bertujuan untuk mengendalikan kelebihan reaktivitas teras reaktor akibat pemakaian bahan bakar nuklir dengan fraksi bakar tinggi^[4]. Semua upaya ini dilakukan dalam rangka mengantisipasi kenaikan fraksi bakar bahan bakar nuklir tanpa memberikan efek terjadinya kegagalan dini pada elemen bakar nuklir.

Berbagai inovasi telah dilakukan para peneliti untuk mengembangkan bahan bakar UO_2 berbutir besar sebagai bahan bakar dengan fraksi bakar tinggi untuk reaktor tipe PWR, diantaranya dengan menambahkan dopan seperti Nb_2O_5 , TiO_2 , Cr_2O_3 , dan V_2O_5 ke dalam serbuk UO_2 ^[5,6]. Ukuran butir UO_2 dalam produk sinter akhir

tergantung pada jenis dan jumlah dopan yang ditambahkan ke dalam bahan bakar. Namun, dopan yang ditambahkan ke dalam bahan bakar tidak boleh menurunkan sifat standar bahan bakar nuklir. Sehubungan dengan hal tersebut maka senyawa TiO_2 dipilih sebagai dopan dalam pembuatan bahan bakar pelet UO_2 berbutir besar dengan pertimbangan bahwa TiO_2 dapat meningkatkan mampu sinter serbuk dan mempromosikan pertumbuhan butir hingga ukuran butir UO_2 sinter sekitar 80 μm serta perilaku transfer termalnya sangat baik^[7].

Selain memperbesar ukuran butir pelet UO_2 , inovasi lain yang dilakukan para peneliti adalah untuk mencegah terjadinya kegagalan elemen bakar nuklir yaitu dengan penggunaan bahan bakar nuklir berlapis penyerap dapat bakar hidropobik atau *Integrated Fuel Burnable Absorber* (IFBA). Bahan pelapis yang memenuhi kriteria IFBA adalah material yang mempunyai tampang lintang serapan neutron termal rendah, sifat fisika, mekanik baik, ketahanan aus dan korosi tinggi serta kompatibilitas dengan bahan bakar^[8]. Zirkonium diborida (ZrB_2) dipilih sebagai material pelapis karena memenuhi kriteria IFBA serta mampu menaikkan umur elemen bakar nuklir dalam teras reaktor dan mengendalikan reaktivitas reaktor nuklir yang lebih baik dibandingkan gadolinium oksida (Gd_2O_3)^[8].

Permasalahan yang dihadapi dalam pembuatan bahan bakar UO_2 dengan fraksi bakar yang tinggi adalah meminimalkan pelepasan gas produk fisi dan mengendalikan reaktivitas teras reaktor PWR. Dari sisi pelepasan gas produk fisi, kandungan dopan dalam pelet UO_2 yang semakin besar akan memberikan dampak pada kebolehjadian terjadinya pengurangan pelepasan gas hasil fisi bertambah besar. Namun bila ditinjau dari sisi proses pelapisan permukaan pelet UO_2 dengan menggunakan metoda *sputtering*, uap kimia ZrB_2 akan lebih mudah memasuki pelet UO_2 + dopan sinter yang berbutir lebih besar dan

terdeposited menjadi lapisan IFBA yang kuat dan kompak pada permukaan pelet. Semakin banyak ZrB_2 terdifusi maka semakin banyak unsur boron yang terkandung dalam lapisan permukaan pelet. Hal ini tidak diinginkan karena unsur boron berfungsi sebagai penyerap neutron termal sehingga sangat merugikan secara ekonomi neutron. Sementara itu, apabila butir dalam pelet UO_2 + dopan sinter kecil maka proses pelapisan permukaan pelet relatif sulit dan membutuhkan tekanan lebih tinggi^[8,9]. Sehubungan dengan hal tersebut maka dibuat kompromi teknis dan ekonomi neutron dengan cara membuat pelet UO_2 + dopan sinter berlapis tipis zirkonium diborida dengan ketebalan 2 sampai dengan 6 μm . Hal ini sesuai dengan kriteria IFBA yang direkomendasikan untuk bahan bakar nuklir dengan fraksi bakar tinggi^[9].

Berdasarkan uraian tersebut di atas, maka dalam penelitian ini akan dibuat pelet UO_2 + dopan TiO_2 sinter berlapis tipis bahan penyerap dapat bakar (ZrB_2) dengan metode *radio frequency* (RF) *sputtering*. Selanjutnya, lapisan penyerap dapat bakar tersebut dikarakterisasi untuk mendapatkan karakter mikrostruktur pelet UO_2 + dopan TiO_2 sinter, kekerasan mikro, komposisi kimia dan struktur kristal lapisan penyerap dapat bakar pada permukaan pelet UO_2 . Hipotesis penelitian yang diajukan adalah konsentrasi dopan TiO_2 akan mempengaruhi ukuran butir dan ketebalan lapisan permukaan pelet UO_2 sinter

METODOLOGI

Bahan yang digunakan dalam pembuatan pelet UO_2 berlapis tipis bahan penyerap dapat bakar adalah pelet UO_2 dengan dopan TiO_2 . Titanium oksida (TiO_2) yang ditambahkan dalam pembuatan pelet UO_2 terdiri dari 3 (tiga) variasi yaitu 0,3 %, 0,5 % dan 0,7 % berat. Bahan lainnya adalah pelat ZrB_2 dengan diameter 75 mm dan tebal 4 mm sebagai target serta lem konduktif (Ag *paint*)^[10]. Sementara itu, bahan

yang digunakan dalam karakterisasi kapisan penyerap dapat bakar pada permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 adalah resin acryfic dan pengeras sebagai bahan pembeding (*mounting*), kertas ampelas grit 320 sampai dengan 1200, pasta intan grit 0,5 μm serta bahan etsa yaitu asam nitrat, asam khlorida, asam fluorida dan gliserin. Peralatan yang digunakan dalam pelapisan permukaan pelet UO_2 adalah mesin *radio frequency* (RF) *sputtering*. Sementara itu, mesin potong, mesin gerinda dan poles digunakan untuk melakukan preparasi metalografi sampel. Peralatan mikroskop optik (MO), spektrometer *X-ray fluorescence* (XRF) dan difraktometer sinar-X (XRD) digunakan untuk mengkarakterisasi lapisan penyerap dapat bakar pada permukaan pelet UO_2 .

Proses pelapisan pelet UO_2 + dopan TiO_2 dengan ZrB_2 dilakukan dengan menggunakan mesin RF *sputtering* pada kondisi tegangan bias 1.000 volt, jarak antar pelet dan target diatur sedemikian hingga terjadi awan elektron, tekanan 10^{-5} mbar, dan waktu proses 100 menit. Langkah berikutnya, mesin RF *sputtering* dimatikan dan setelah dingin pelet UO_2 berlapis tipis ZrB_2 dilepas dari pemegang spesimen. Proses selanjutnya adalah karakterisasi terhadap lapisan permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 .

Tahapan preparasi metalografi terhadap lapisan penyerap dapat bakar pada permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 adalah (1) pelet dipotong dengan mesin *accutom* menjadi 3 (tiga) bagian masing-masing untuk sampel metalografi dan kekerasan, sampel uji XRF dan sampel uji XRD; (2) sampel metalografi dibingkai dengan resin acryfic dan pengeras; (3) sampel diampelas dengan kertas ampelas grit 320 hingga 1.200 untuk mendapatkan permukaan sampel yang rata dan bebas goresan; (4) sampel dipoles dengan pasta intan grit 0,5 μm untuk mendapatkan permukaan rata dan mengkilap, dan berikutnya dilakukan proses etsa; (5)

pengamatan mikrostruktur dan ketebalan lapisan sampel menggunakan mikroskop optik. Pengamatan mikrostruktur pelet UO_2 + dopan TiO_2 sinter dan ketebalan lapisan pada permukaan pelet UO_2 menggunakan mikroskop optik.

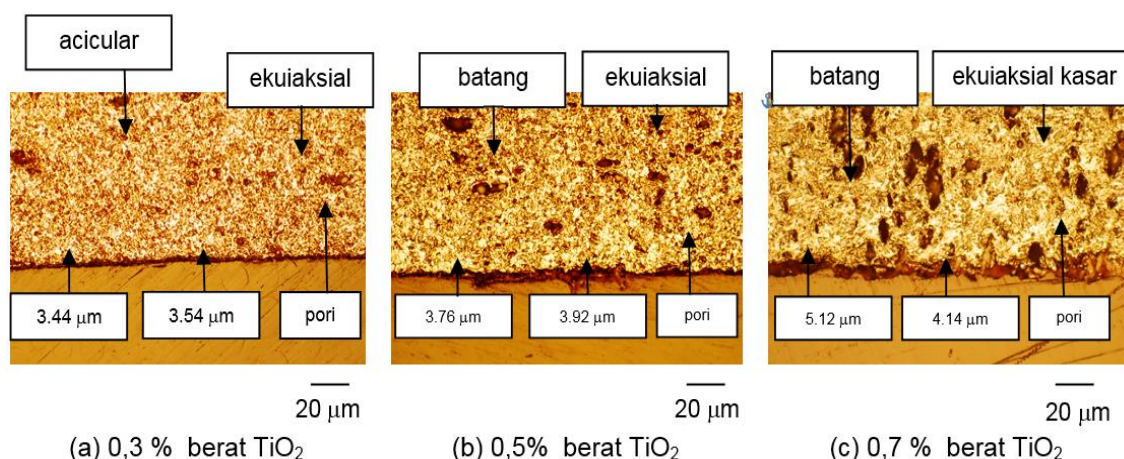
Analisis kekerasan mikro pelet dan lapisan permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 dilakukan dengan menggunakan peralatan uji kekerasan mikro *Vickers* dengan beban indenter sebesar 245,25 N, pada 3 (tiga) titik di lokasi pelet dan lapisan pada permukaan pelet. Sementara itu, penentuan komposisi kimia dilakukan dengan peralatan XRF menggunakan metode kualitatif dan metode kuantitatif. Metode kualitatif digunakan untuk mengetahui jenis unsur penyusun dan metode kuantitatif untuk menentukan

konsentrasi unsur yang terdapat pada lapisan permukaan pelet UO_2 . Struktur kristal dan fasa-fasa yang terbentuk dalam proses pelapisan permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 ditentukan dengan menggunakan metode difraksi sinar-X menggunakan peralatan XRD.

HASIL DAN PEMBAHASAN

a. Mikrostruktur

Gambar 1 menunjukkan mikrostruktur pelet UO_2 dengan kandungan dopan 0,3 %, 0,5 % dan 0,7 % berat. Gambar 1 (a) terlihat bahwa mikrostruktur pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 mempunyai campuran butir ekuiaksial halus dan *acicular* serta pori-pori *intergranular* sferis.



Gambar 1. Mikrostruktur pelet UO_2 + dopan TiO_2 .

Gambar 1 (b) menunjukkan bahwa mikrostruktur pelet UO_2 + 0,5 % TiO_2 yang mempunyai butir batang dan ekuiaksial relatif besar dengan pori-pori *intergranular* sferis. Sementara itu, dari Gambar 1 (c) menunjukkan bahwa mikrostruktur pelet UO_2 + 0,7 % TiO_2 yang mempunyai butir batang dan ekuiaksial dengan pori-pori *intergranular* sferis lebih besar dibandingkan dengan Gambar 1 (b). Mikrostruktur UO_2 + dopan TiO_2 dengan kandungan 0,3 % sampai dengan 0,7 % berat TiO_2 menunjukkan kecenderungan serupa yaitu semakin besar dopan TiO_2 yang terkandung dalam pelet

UO_2 maka ukuran butirnya semakin besar. Hal ini disebabkan bahwa kation pada dopan (Ti^{4+}) di dalam kisi kristal UO_2 akan menimbulkan ketidakseimbangan muatan di dalam kisi, sehingga terjadi cacat-cacat kisi. Adanya cacat kisi dapat meningkatkan mobilitas ion-ion yang berdifusi sehingga menyebabkan koefisien difusi ion dengan dopan menjadi lebih tinggi dibandingkan tanpa dopan^[11].

Kation dopan dari Ti^{4+} dapat menggantikan posisi kation U^{4+} dan dapat menempati kekosongan (*vacancies*) di dalam kisi. Pada temperatur dimana terjadi

reaksi larutan padat, difusivitas ion U^{4+} bertambah besar sehingga cukup efektif untuk mengubah muatan kisi menjadi lebih positif. Penambahan dopan TiO_2 akan mengurangi konsentrasi kekosongan anion sehingga konsentrasi kation bertambah. Bertambahnya jumlah kekosongan kation atau uranium di dalam kisi akan menaikkan koefisien difusinya dan memperbesar proses pertumbuhan butir yang terjadi^[12].

Dopan TiO_2 memberikan efek terhadap penurunan kekerasan dan kenaikan densitas pelet UO_2 . Mikrostruktur pelet UO_2 berukuran butir besar ($> 30 \mu m$) akan memperbesar panjang difusi gas-gas produk fisi ke batas butir sehingga dapat menunda waktu pelepasan gas hasil fisi dari pelet UO_2 . Kenaikan densitas pelet UO_2 memberikan dampak pada penurunan kebolehan terjadinya densifikasi selama iradiasi terhadap bakar bakar. Sementara itu, pelet UO_2 yang lebih lunak dapat mengurangi dan menurunkan kebolehan terjadinya intensitas proses *pellet-cladding mechanical interaction* (PCMI) pada saat reaktor daya beroperasi dengan beban maksimal. Fenomena ini dapat mengurangi atau meminimalkan resiko kegagalan kelongsong bahan bakar nuklir^[13].

Gambar 1 (a), (b) dan (c) memperlihatkan adanya lapisan tipis pada permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 . Lapisan tipis terbentuk dari proses *sputtering* target ZrB_2 ke arah permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 yang berpengaruh kepada ketebalan lapisan permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 . Pada Tabel 1 terlihat bahwa ketebalan lapisan rata-rata pada permukaan pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 adalah $2,74 \mu m$, sedangkan ketebalan lapisan pada permukaan pelet UO_2 + 0,5 % TiO_2 dan pelet UO_2 + 0,7 % TiO_2 masing-masing adalah $3,79 \mu m$ dan $4,28 \mu m$. Sementara itu, diameter butir dalam mikrostruktur pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 , pelet UO_2 + 0,5 % TiO_2 dan pelet UO_2 + 0,7 % TiO_2 masing-masing adalah $20,72 \pm 0,84 \mu m$; $22,60 \pm 1,22 \mu m$ dan $24,56 \pm$

$1,51 \mu m$. Tabel 1 menunjukkan bahwa lapisan IFBA bertambah tebal seiring dengan bertambah besarnya diameter butir dalam mikrostruktur permukaan pelet UO_2 ^[8]. Pada pelet UO_2 berbutir besar, energi ikat antar atomnya lebih rendah sehingga energi yang dibutuhkan atom-atom ZrB_2 untuk berdifusi ke permukaan pelet UO_2 lebih rendah dibandingkan pada permukaan pelet UO_2 berbutir kecil. Kondisi tersebut memungkinkan laju deposisi atom-atom ZrB_2 ke permukaan pelet UO_2 berbutir besar semakin tinggi sehingga lapisan yang terbentuk semakin tebal^[14]. Ketebalan lapisan pada permukaan pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 , pelet UO_2 + 0,5 % TiO_2 dan pelet UO_2 + 0,7 % TiO_2 antara $2,74 \mu m$ sampai dengan $4,28 \mu m$. Besarnya ketebalan lapisan ini masih dalam rentang lapisan IFBA yang direkomendasikan yaitu $2 - 6 \mu m$ ^[9].

Tabel 1. Ketebalan lapisan permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2

Sampel	Ketebalan lapisan (μm)	Diameter butir (μm)
UO_2 + 0,3 % TiO_2 sinter	$2,74 \pm 0,16$	$20,72 \pm 0,84$
UO_2 + 0,5 % TiO_2 sinter	$3,79 \pm 0,28$	$22,60 \pm 1,22$
UO_2 + 0,7 % TiO_2 sinter	$4,28 \pm 0,44$	$24,56 \pm 1,51$

b. Kekerasan Mikro

Hasil pengolahan data uji kekerasan mikro pelet UO_2 + dopan TiO_2 dan lapisan ZrB_2 ditunjukkan pada Tabel 2. Kekerasan pelet UO_2 + dopan TiO_2 menurun seiring dengan bertambah besarnya kandungan TiO_2 dalam pelet. Kekerasan diperoleh sebesar 516 VHN untuk 0,3 % TiO_2 , 510 VHN untuk 0,5 % TiO_2 dan 488 VHN untuk 0,7 % TiO_2 . Penurunan kekerasan pelet UO_2 + dopan TiO_2 terjadi karena semakin besar kandungan dopan TiO_2 maka akan semakin besar butir-butir dalam mikrostruktur pelet UO_2 .

Tabel 2. Kekerasan pelet UO_2 + dopan TiO_2 berlapis tipis ZrB_2

Sampel	Kekerasan, VHN	
	Pelet	Lapisan permukaan
UO_2 + 0,3 % TiO_2 sinter berlapis tipis ZrB_2	516	404
UO_2 + 0,5 % TiO_2 sinter berlapis tipis ZrB_2	510	398
UO_2 + 0,7 % TiO_2 sinter berlapis tipis ZrB_2	488	401

Pembesaran ukuran butir pelet UO_2 menyebabkan tegangan sisa dalam struktur menurun sehingga dapat menurunkan kerapatan dislokasi dan disertai dengan efek pelunakan pada pelet UO_2 . Kondisi ini menyebabkan gaya ikat antar atomnya rendah sehingga kemampuan menahan beban luar yang diterapkan pada pelet menjadi rendah. Dengan demikian semakin besar kandungan TiO_2 dalam pelet maka akan semakin besar diameter butir dan semakin rendah kekerasan pelet UO_2 ^[15].

Tabel 2 juga memperlihatkan bahwa kekerasan lapisan pada permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 sinter relatif sama. Kekerasan lapisan pelet UO_2 diperoleh masing-masing sebesar 404 VHN untuk kandungan 0,3 % TiO_2 , 398 VHN untuk kandungan 0,5 % TiO_2 dan 401 VHN untuk kandungan 0,7 % TiO_2 . Nilai kekerasan yang relatif sama tersebut menunjukkan bahwa kekerasan lapisan tipis pada permukaan pelet UO_2 tidak bergantung pada konsentrasi dopan TiO_2 yang terkandung dalam pelet. Hal ini berarti lapisan tipis yang terbentuk pada permukaan pelet UO_2 tersusun oleh komponen kimia yang sama dari material target. Dengan demikian, pada permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 telah terbentuk lapisan penyerap dapat bakar yang tersusun oleh zirkonium diborida.

c. Komposisi Kimia

Peralatan XRF yang digunakan dalam penelitian adalah XRF tipe EDXRF

(*Energy Dispersive XRF*) yang mempunyai kemampuan analisis unsur dengan rentang dari $_{11}\text{Na}$ sampai dengan $_{92}\text{U}$. Sehubungan hal tersebut, peralatan XRF ini hanya dapat mengidentifikasi unsur zirkonium sedangkan unsur boron tidak dapat diidentifikasi secara kualitatif. Oleh karena itu, apabila dalam lapisan permukaan pelet teridentifikasi adanya unsur Zr maka lapisan tersusun dari senyawa ZrB_2 .

Lapisan ZrB_2 yang terdapat pada permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 sangat tipis yaitu 2,74 μm sampai dengan 4,28 μm , maka dalam penentuan konsentrasi Zr digunakan sampel standar UZr sebesar 20 ppm. Analisis kuantitatif hasil pengujian komposisi kimia lapisan permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 menggunakan XRF ditunjukkan dalam Tabel 3.

Tabel 3. Konsentrasi unsur zirkonium dalam lapisan pelet UO_2 + dopan TiO_2

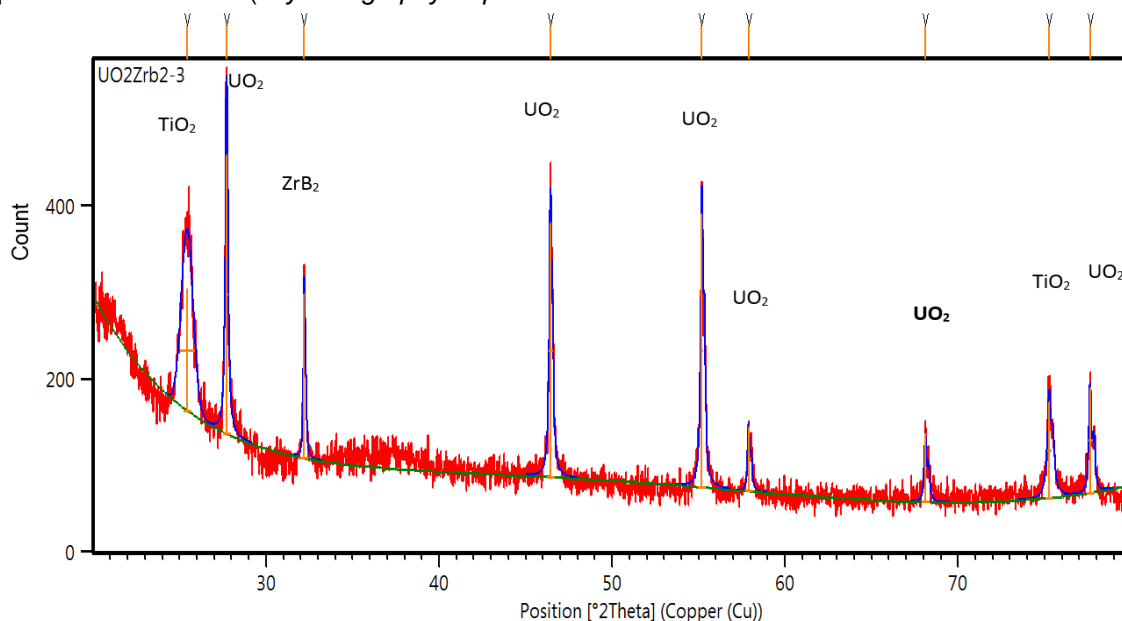
Sampel	Konsentrasi Zr (μg)
Pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 berlapis tipis	$1,97 \pm 0,27$
Pelet UO_2 + 0,5 % TiO_2 berlapis tipis	$2,47 \pm 0,30$
Pelet UO_2 + 0,7 % TiO_2 berlapis tipis	$4,81 \pm 0,49$

Tabel 3 memperlihatkan bahwa pada sampel pelet UO_2 + dopan TiO_2 berlapis tipis terdapat unsur zirkonium dengan konsentrasi masing-masing adalah ($1,97 \pm 0,37$) μg untuk pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 ; ($2,47 \pm 0,49$) μg untuk pelet UO_2 + 0,5 % TiO_2 dan ($4,81 \pm 0,49$) μg untuk pelet UO_2 + 0,7 % TiO_2 . Adanya kandungan unsur Zr dalam lapisan tipis yang terbentuk pada permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 menunjukkan bahwa lapisan telah tersusun oleh komponen kimia dari material target. Dengan demikian, pada permukaan pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 , pelet UO_2 + 0,5 % TiO_2 dan UO_2 + 0,7 % TiO_2 telah terbentuk lapisan penyerap dapat bakar senyawa ZrB_2 .

d. Kristalografi

Data pengujian kekerasan dan komposisi kimia terhadap pelet UO_2 + dopan TiO_2 mengidentifikasi bahwa lapisan yang terbentuk pada permukaannya adalah zirkonium diborida (ZrB_2). Sehubungan dengan hal tersebut, maka dalam pengujian menggunakan XRD dilakukan terhadap salah satu sampel yaitu pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 . Hasil pengujian XRD terhadap sampel pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 diperoleh pola difraksi berupa grafik dengan puncak-puncak spektrum pada sudut tertentu. Pola difraksi yang diperoleh kemudian dilakukan pencocokan spektrum terhadap basis data pola difraksi COD (*Crystallography Open*

Database). Gambar 2 menunjukkan bahwa pola difraksi pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 berlapis tipis yang dianalisis dengan basis data pola difraksi COD. Sementara itu, Tabel 4 menunjukkan identifikasi terhadap 9 puncak spektrum yang terdapat pada pola difraksi pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 berlapis tipis material penyerap dapat bakar. Dari Gambar 2 dan Tabel 4 diketahui adanya fasa UO_2 yang mempunyai struktur kristal kubus dengan parameter kisi $a = 5,45 \text{ \AA}$ sesuai referensi code #01-073-1715. Selain itu, diperoleh juga adanya fasa ZrB_2 yang mempunyai struktur kristal heksagonal dengan parameter kisi $a = b = 3,17 \text{ \AA}$ dan $c = 3,53 \text{ \AA}$ sesuai referensi code #00-034-0423.



Gambar 2. Pola difraksi pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 berlapis tipis material penyerap dapat bakar.

Tabel 4. Identifikasi puncak spektrum pola difraksi UO_2 + 0,3 % TiO_2 berlapis tipis material penyerap dapat bakar.

Puncak spektrum ke	Sudut 2θ		Senyawa
	Sampel	Referensi	
1	25,421	25,335	TiO_2
2	27,701	28,298	UO_2
3	32,199	32,601	ZrB_2
4	46,429	47,053	UO_2
5	55,186	55,819	UO_2
6	57,888	58,535	UO_2
7	68,104	68,737	UO_2
8	75,260	75,126	TiO_2
9	77,620	78,270	UO_2

Selain fasa diatas, ditemukan juga fasa TiO_2 dengan struktur kristal tetragonal yang mempunyai parameter kisi $a = b = 3,78 \text{ \AA}$ dan $c = 9,51 \text{ \AA}$ sesuai referensi code #01-083-2243. Dengan demikian, dari hasil analisis XRD membuktikan bahwa lapisan penyerap dapat bakar yang terbentuk pada permukaan pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 sinter adalah zirkonium diborida (ZrB_2).

Berdasarkan bahasan mikrostruktur pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 , pelet UO_2 + 0,5 % TiO_2 dan pelet UO_2 + 0,7 % TiO_2 , kekerasan mikro, komposisi kimia dan struktur kristal

lapisan tipis pada permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 , sinter diketahui bahwa kandungan dopan TiO_2 yang ditambahkan mempengaruhi struktur dan ukuran butir dalam mikrostrukturnya. Struktur butir dalam mikrostruktur permukaan pelet UO_2 + dopan 0,3 % TiO_2 sinter lebih seragam dengan ukuran butir relatif kecil sehingga laju difusi atom-atom ZrB_2 lambat dan membutuhkan tekanan lebih tinggi dibandingkan struktur dan ukuran butir permukaan pelet UO_2 + 0,5 % TiO_2 dan pelet UO_2 + 0,7 % TiO_2 sinter. Hal ini menyebabkan pada kondisi proses *sputtering* yang sama, ketebalan lapisan ZrB_2 pada permukaan pelet UO_2 + dopan 0,3 % TiO_2 sinter lebih tipis dibandingkan ketebalan lapisan pada permukaan UO_2 + 0,5 % TiO_2 dan pelet UO_2 + 0,7 % TiO_2 sinter. Lapisan pada permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 sinter mempunyai kekerasan relatif sama dan tidak bergantung pada konsentrasi dopan TiO_2 . Hal ini berarti bahwa lapisan tipis pada permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 sinter tersusun oleh komponen yang sama dari material target ZrB_2 . Lapisan penyerap dapat bakar yang terbentuk pada permukaan pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 , pelet UO_2 + 0,5 % TiO_2 dan pelet UO_2 + 0,7 % TiO_2 sinter adalah ZrB_2 yang dibuktikan dengan adanya unsur Zr secara kuantitatif dari hasil pengujian lapisan dengan XRF dan fasa ZrB_2 dengan struktur kristal heksagonal dari hasil pengujian XRD.

SIMPULAN

Pembuatan lapisan penyerap dapat bakar pada permukaan bahan bakar nuklir dengan menggunakan metoda *sputtering* telah berhasil dilakukan pada pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 , pelet UO_2 + 0,5 % TiO_2 dan pelet UO_2 + 0,7 % TiO_2 sinter. Karakter mikrostruktur pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 sinter yang diperoleh adalah butir campuran ekuiaksial dan *acicular* dengan diameter rerata 20,72 μm , pelet UO_2 + 0,5 % TiO_2 berupa campuran batang dan ekuiaksial

dengan diameter butir rerata 22,60 μm , sedangkan pelet UO_2 + 0,7 % TiO_2 sinter mempunyai struktur butir berupa ekuiaksial kasar dan batang dengan diameter butir rerata 24,56 μm . Lapisan yang terbentuk pada permukaan pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 , pelet UO_2 + 0,5 % TiO_2 dan pelet UO_2 + 0,7 % TiO_2 sinter mempunyai ketebalan rerata masing-masing sebesar 2,74 μm , 3,79 μm dan 4,28 μm . Kekerasan lapisan pada permukaan pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 , pelet UO_2 + 0,5 % TiO_2 dan pelet UO_2 + 0,7 % TiO_2 sinter rerata masing-masing adalah 404 VHN, 398 VHN dan 401 VHN. Kekerasan lapisan tidak bergantung pada konsentrasi dopan TiO_2 . Lapisan permukaan pelet UO_2 + 0,3 % TiO_2 , pelet UO_2 + 0,5 % TiO_2 dan pelet UO_2 + 0,7 % TiO_2 sinter mengandung unsur zirkonium masing-masing 1,97 μg , 2,47 μg dan 4,81 μg . Karakter lapisan penyerap dapat bakar yang terbentuk pada permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 sinter adalah fasa ZrB_2 yang mempunyai struktur kristal heksagonal dengan parameter kisi $a = b = 3,17 \text{ \AA}$ dan $c = 3,53 \text{ \AA}$.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Dr. Jan Setiawan, M.Si, Helmi Fauzi R, S.ST, Edi Indarto, A.Md dan Isfandi, A.Md yang telah membantu pelaksanaan dalam pembuatan dan karakterisasi lapisan permukaan pelet UO_2 + dopan TiO_2 .

DAFTAR PUSTAKA

- [1] P. R. Rudling, et al., (2008). *High Burnup Fuel Issues*, Journal Nuclear. Engineering and Technology., 40 (1), Hal. 1-8.
- [2] Wei, J., P. Frankel, E. Polatidis, M. Blat, A. Ambard, R. J. Comstock, L. Hallstadius, D. Hudson, G. D. W. Smith, C. R. M. Grovenor, M. Klausf, R. A. Cottis, S. Lyon, M. Preuss, (2013). *The Effect of Sn on Autoclave*

- Corrosion Performance and Corrosion Mechanisms in Zr-Sn-Nb Alloys*, Acta Materialia, 61, Hal.4200-4214.
- [3] Masih, A. R. (2014). *Effects of Additives on Uranium Dioxide Fuel Behaviour*, Report Number 2014 : 21 ISSN : 2000-0456, Stral Sakerhets Myndigheten, Swedish.
- [4] Yahya, M. S., (2016). *Burnable Absorber-integrated Guide Thimble (BigT) – II: Application to 3D PWR Core Design*, Journal of Nuclear Science and Technology, 53 (10), Hal. 1521-1527.
- [5] Futichah, T. Yulianto, (2013). *Pembesaran Ukuran Butir UO_2 Dengan Penambahan Dopan Untuk Mengurangi Pelepasan Gas Fisi*, Jurnal Teknologi Bahan Nuklir 9 (1), Hal. 1-11.
- [6] Mutiara, E., T. Yulianto, (2013). *Efek Penambahan Dopan Terhadap Karakteristik Pelet UO_2 Sinter*, Jurnal Urania, 19 (2), Hal. 84-91.
- [7] Yao, T., S. M. Scott, G. Xin, J. Lian, (2015). *TiO_2 Doped UO_2 Fuels Sintered by Spark Plasma Sintering*, Journal of Nuclear Materials 469, Hal.251-261.
- [8] C. Sironen, (2014). *Neutronic Characteristics of Using Zirconium Diboride and Gadolinium in a Westinghouse 17x17 Fuel Assembly*, Dissertation No. 1509920,, University of South Carolina
- [9] Sungkono, T. Yulianto, (2015). *Karakterisasi Zirconium Diborida Sebagai Bahan Lapisan Penyerap Mampu Bakar Pada Pelet UO_2* , Jurnal Teknologi Bahan Nuklir 11 (1), Hal. 1-12.
- [10] P. Liu, P. Zhang, X. Pang, Q. Wang, T. Liu, (2012). *A Study on Fabrication Technique of ZrB₂ Target*, Proceeding Engineering, 27, Hal. 1305-1312.
- [11] R. Jovani-Abril, (2014). *Synthesis and Characterization of Nanocrystalline UO_2 Ceramics*, Dissertation, Universidad de Santiago de Compostela, Spain, Hal. 171-179.
- [12] V. Peres, L. Favergeon, M. Andrieu, J. C. Palussiere, J. Baland, C. Delafoy, M. Pijolat, (2012). *High Temperature Chromium Volatilization from Cr_2O_3 Powder and Cr_2O_3 -Doped UO_2 Pellets in Reducing Atmospheres*, J. of Nuclear Materials, 423, Hal.93-101.
- [13] L. Tengdelius, (2013). *Growth and Characterization of ZrB₂ Thin Films*, Thesis No. 1614, Linkoping University, Sweden.
- [14] Rhee, Y. W., D. J. Kim, I. H. Nam, J. H. Kim, J. S. Oh, J. H. Yang, K. S. Kim, (2012). *Fabrication of Boron-containing Burnable Absorber Fuel Pellet*, Tran. of the Korean Nuclear Society Spring Meeting, Jeju, Korea.
- [15] Armstrong, R. W., (2014). *Engineering Science Aspects of The Hall-Petch Relation*, Acta Mechanica, 225 (4), Hal. 1013-1028.